

# N-(4-PYRIMIDINYL)AMIDE PESTICIDES

**Publication number:** JP9507245 (T)

**Publication date:** 1997-07-22

**Inventor(s):**

**Applicant(s):**

**Classification:**

- international: **A01N43/54; A01N55/00; A01N57/32; C07D239/42; C07D239/46; C07D401/12; C07F7/10; C07F9/6512; A01N43/48; A01N55/00; A01N57/00; C07D239/00; C07D401/00; C07F7/00; C07F9/00;** (IPC1-7): A01N43/54; A01N55/00; A01N57/32; C07D239/42; C07F7/10; C07F9/6512

- European: A01N43/54; C07D239/42; C07D239/47; C07D401/12

**Application number:** JP19940518511 19941222

**Priority number(s):** WO1994US14848 19941222; US19940178989 19940107

**Also published as:**

WO9518795 (A1)  
EP0738264 (A1)  
CA2176501 (A1)  
BR9408475 (A)  
AU1517895 (A)  
AU677502 (B2)

<< less

Abstract not available for JP 9507245 (T)

Abstract of corresponding document: **WO 9518795 (A1)**

N-(4-pyrimidinyl)amide pesticides of formulas (1, 2) and N-oxides and salts thereof, wherein the variable groups are as defined in the specification, are active against nematodes, insects, mites, and plant pathogens.



(1)



(2)

.....  
Data supplied from the **espacenet** database — Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

## (12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表平9-507245

(43) 公表日 平成9年(1997)7月22日

(51) Int.Cl. <sup>4</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	
C 0 7 D 239/42		8615-4C	C 0 7 D 239/42	Z
A 0 1 N 43/54		7508-4H	A 0 1 N 43/54	B
		7508-4H		C
55/00		7508-4H	55/00	D
57/32	1 0 3	7508-4H	57/32	1 0 3
審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 54 頁) 最終頁に続く				

(21) 出願番号 特願平7-518511  
 (36) (22) 出願日 平成6年(1994)12月22日  
 (35) 翻訳文提出日 平成8年(1996)7月2日  
 (86) 国際出願番号 P C T / U S 9 4 / 1 4 8 4 8  
 (87) 国際公開番号 W O 9 5 / 1 8 7 9 5  
 (87) 国際公開日 平成7年(1995)7月13日  
 (31) 優先権主張番号 0 8 / 1 7 8 , 9 8 9  
 (32) 優先日 1994年1月7日  
 (33) 優先権主張国 米国 (U S)

(71) 出願人 ダウエランコ  
 アメリカ合衆国インディアナ州46268イン  
 ディアナポリス・ジョンズビルロード9330  
 (72) 発明者 ジョンソン, ビーター・エル  
 アメリカ合衆国インディアナ州46260-  
 2807 インディアナポリス・ノースダート  
 マスロード8016  
 (74) 代理人 弁理士 小田島 平吉

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 N-(4-ピリミジニル) アミド有害生物防除剤

(57) 【要約】



(1)



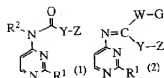
(2)

種々の基が明細書に定義されている通りである式(1、  
 2)のN-(4-ピリミジニル)アミド有害生物防除

剤、ならびにそれらのN-オキシド類及び塩類は、線虫  
 類、昆虫及び植物病原体に対して活性である。

## 【特許請求の範囲】

1. 式(1)又は(2)：



[式中、

R<sup>1</sup>はH、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>)分枝鎖状アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>)シクロアルキル、(C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>)アルケニル、(C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>)分枝鎖状アルケニル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルコキシ、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルコキシ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルコキシ、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキルチオ、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキルスルホニル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキルスルフィニル、ハロ又はフェニルであり；

R<sup>2</sup>はH、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>)分枝鎖状アルキル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルカノイル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルコキシメチル、CH<sub>2</sub>S i R<sup>10</sup>R<sup>11</sup>、ヒドロキシメチル、ベンジ

ル、(C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>)シクロアルキルメチル又は
$$\begin{array}{c} \text{T} \\ \parallel \\ \text{P} \\ \diagup \quad \diagdown \\ \text{TR}^6 \quad \text{TR}^{7'} \end{array}$$
であり、ここ

でR<sup>6</sup>、R<sup>10</sup>及びR<sup>11</sup>は独立して(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>)分枝鎖状アルキル、フェニル又は置換フェニルであり、各Tは独立してO又はSであり、R<sup>6</sup>及びR<sup>7</sup>は独立して(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>)分枝鎖状アルキル、フェニル又は置換フェニルであり；

Yは

(1) 場合により(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、(C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>)アルケニル、

(C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>)アルキニル、分枝鎖状(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>)アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>)シクロアルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>)シクロアルケニル、ハロ、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、

ハロ（ $C_1-C_4$ ）アルコキシ、ヒドロキシ、CN、（ $C_1-C_4$ ）アルカノイル、（ $C_1-C_4$ ）アルコシカルボニル、アリールが下記に定義される通りであるアリールオキシカルボニル、ヒドロキシ（ $C_1-C_4$ ）アルキル、（ $C_1-C_4$ ）アルコキシ（ $C_1-C_4$ ）アルキルにより置換されていることができる $-CH_2-$ 、あるいは

（2） $R^{27}$ 及び $R^{28}$ が独立してH、（ $C_1-C_4$ ）アルキル、（ $C_1-C_4$ ）アルコキシ、SH、S-低級アルキル、 $NH_2$ 、NH-低級アルキル、N、N-ジ低級アルキル、O-低級アルキル、OH、モルホリノ、ピペリジニル、ピロリジニル、チオモルホリノから選ばれるか、又は $R^{27}$ 及び $R^{28}$ が結合し、場合によりO、Sもしくは $NR^5$ から選ばれる1もしくは2個のヘテロ原子を含むことができる（ $C_5-C_8$ ）飽和もしくは不飽和環の一部を形成し、ここで $R^5$ がH、（ $C_1-C_4$ ）アルキルも

しくは（ $C_1-C_4$ ）アルカノイルである 
$$\begin{array}{c} -C- \\ || \\ R^{27}-C-R^{28} \end{array}$$
 であり；

Zは

（1）場合により（ $C_1-C_4$ ）アルキル、（ $C_1-C_4$ ）アルコキシ、ハロ（ $C_1-C_4$ ）アルキル、ハロ（ $C_1-C_4$ ）アルコキシ、ハロ、ヒドロキシもしくは（ $C_1-C_4$ ）アルカノイルから独立して選ばれる1つ又はそれ以上の基により置換されていることができる（ $C_3-C_8$ ）シクロアルキル又はシクロアルケニル；あるいは

（2）アリールが

（a）場合により：

ハロ、

（ $C_3-C_8$ ）シクロアルキル、

（ $C_3-C_8$ ）シクロアルケニル、

フェノキシ、

置換フェノキシ、

フェニルチオ、

置換フェニルチオ、

フェニル、

置換フェニル、

$\text{NO}_2$ 、

$\text{R}^8$ が $(\text{C}_1-\text{C}_7)$ アルキル、ハロ $(\text{C}_1-\text{C}_7)$ アルキル、 $(\text{C}_8-\text{C}_7)$ 分枝鎖状アルキル、ハロ $(\text{C}_8-\text{C}_7)$ 分枝鎖状アルキル、 $(\text{C}_8-\text{C}_7)$ シクロアルキル、ハロ $(\text{C}_8-\text{C}_7)$ シクロアルキル、 $(\text{C}_1-\text{C}_7)$ アルコキシ、ヒドロキシ、フェニル、置換フェニル、フェノキシもしくは

は置換フェノキシである  $\begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}-\text{R}^8 \end{array}$ 、

$\text{R}^8$ がヒドロキシを除く以外は上記の通りに定義される  $\begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{O}-\text{C}-\text{R}^8 \end{array}$ 、

$\text{OH}$ 、

$\text{CN}$ 、

$\text{R}^9$ 、 $\text{R}^{10}$ 及び $\text{R}^{11}$ が独立して $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルキル、 $(\text{C}_8-\text{C}_4)$ 分枝鎖状アルキル、フェニルもしくは置換フェニルである  $\text{Si R}^9 \text{R}^{10} \text{R}^{11}$ もしくは  $\text{OSi R}^9 \text{R}^{10} \text{R}^{11}$ 、

$\text{R}^{12}$ 及び $\text{R}^{13}$ が独立して $\text{H}$ 、 $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルキルもしくは $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルカノイルである  $\text{NR}^{12} \text{R}^{13}$ 、

$\text{R}^{14}$ が $(\text{C}_1-\text{C}_{16})$ アルキル、フェニルもしくは置換フェニルである  $\text{S}(\text{O}) \text{R}^{14}$ 、 $\text{SO}_2 \text{R}^{14}$ もしくは $\text{OSO}_2 \text{R}^{14}$ ；

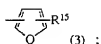
場合により $\text{O}$ 、 $\text{S}$ 、 $\text{SO}$ 、 $\text{SO}_2$ 、 $\text{NR}^5$ もしくは $\text{Si R}^6 \text{R}^7$ から選ばれるヘテロ原子を含むことができ、ここで $\text{R}^5$ 、 $\text{R}^6$ 及び $\text{R}^7$ は上記で定義された通りであり、そして場合によりハロ、ハロ $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルコキシ、ヒドロキシ、 $(\text{C}_8-\text{C}_8)$ シクロアルキルもしくはシクロアルケニル、 $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルカノイル、フェノキシ、置換フェノキシ、フェニル、置換フェニル、フェニルチオ、置換フェニルチオ又はシアノにより置換されていることができる直鎖状もしくは分枝鎖状 $(\text{C}_1-\text{C}_{12})$ 飽和もしくは不飽和炭化水素鎖；

場合によりハロ、フェニル、置換フェニル、(C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>)シクロアルキルもしくはシクロアルケニル、フェノキシ又は置換フェノキシにより置換されていることができる(C<sub>1</sub>-C<sub>7</sub>)アルコキシ；あるいは

場合によりハロ、フェニル、置換フェニル、(C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>)シクロアルキルもしくはシクロアルケニル、フェノキシ又は置換フェノキシにより置換されていることができる(C<sub>1</sub>-C<sub>7</sub>)アルキルチオ；

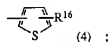
から独立して選ばれる1つ又はそれ以上の基により置換されていることができるフェニル基；

(b) R<sup>15</sup>がH、ハロ、ハロメチル、CN、NO<sub>2</sub>、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>)分枝鎖状アルキル、フェニル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルコキシである式(3)のフリル基

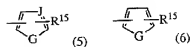


(c) R<sup>16</sup>がH、ハロ、ハロメチル、CN、NO<sub>2</sub>、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)

アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>)分枝鎖状アルキル、フェニル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルコキシ又はチエニルである式(4)のチエニル基



(d) R<sup>16</sup>が(b)の節において定義された通りであり、JがN又はCHであり、GがO、NR<sup>17</sup>又はSであり、但しJがNでない場合、GはNRであり、ここでR<sup>17</sup>はH、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルカノイル、フェニルスルホニル又は置換フェニルスルホニルである式(5)又は(6)の基



(e) 場合により置換されていることができるナフチル、ジヒドロナフチル、テトラヒドロナフチル及びデカヒドロナフチル；

場合により置換されていることができるインドリル；

1,3-ベンゾジオキソリル；

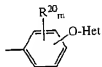
2, 6-ジメチル-4-ホルホルニル; 及び

1-アダマンチル

から選ばれる基;

(f) mが4であり; 各 $R^{20}$ が独立してH、ハロ、低級アルキル、低級アルコキシ、ハロアルキル、ハロアルコキシ、 $NO_2$ 、CN、低級アルキルカルボニル、 $S(O)R^{14}$ 、 $SO_2R^{14}$ もしくは $OSO_2R^{14}$ 、フェノキシ又は置換フェノキシであり、ここで $R^{14}$ は $(C_1-C_{10})$ アルキル、フェニル又は置換フェニルであり; 但し $R^{20}$ の少なくとも2つはH及びFから選ばれ; Hetが場合によりハロ、低級アルキル、低級

アルコキシ、ハロアルキル、ハロアルコキシ、 $NO_2$ 、CN及び低級アルキルカルボニルから選ばれる1つ又はそれ以上の基により置換されていることができるピリジニル、ピラジニル、ピリミジニル又はピリダジニルである式



の基;

(g)  $X^2$ 及び $X^3$ の1つがNであり、他が $CR^{23}$ であり;

$R^{21}$ が-T- $R^{22}$ 、フェニル、置換フェニル、 $(C_1-C_{10})$ アルキル、ハロ又はハロ $(C_1-C_8)$ アルキルであり、ここで

TはO又はSであり、

$R^{22}$ は $(C_1-C_4)$ アルキル、 $(C_3-C_7)$ 分枝鎖状アルキル、ハロ $(C_1-C_7)$ アルキル、ハロ $(C_3-C_7)$ 分枝鎖状アルキル、 $(C_1-C_4)$ アルコキシ $(C_1-C_4)$ アルキル、又はいずれの場合によりハロ、 $(C_1-C_{10})$ アルキル、分枝鎖状 $(C_3-C_7)$ アルキル、ハロ $(C_1-C_7)$ アルキル、ヒドロキシ $(C_1-C_7)$ アルキル、 $(C_1-C_4)$ アルコキシ、ハロ $(C_1-C_4)$ アルコキシ、フェノキシ、置換フェノキシ、フェニル、置換フェニル、CN、 $NO_2$ 、OH、 $(C_1-C_4)$ アルカノイルオキシもしくはベンジルオキシから選ばれる最高3

つの基により置換されていることができるナフチルもしくはフェニルであり；

R<sup>23</sup>は：

H、

ハロ、

(C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>) シクロアルキル、

(C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>) シクロアルケニル、

フェノキシ、

置換フェノキシ、

フェニルチオ、

置換フェニルチオ、

フェニル、

置換フェニル、

NO<sub>2</sub>、

R<sup>8</sup>が(C<sub>1</sub>-C<sub>7</sub>) アルキル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>7</sub>) アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>) 分枝鎖状アルキル、ハロ(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>) 分枝鎖状アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>) シクロアルキル、ハロ(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>) シクロアルキル、(C<sub>1</sub>-C<sub>7</sub>) アルコキシ、フェニル、置換フェニル又はヒドロキシである



アセトキシ、

OH、

CN、

R<sup>9</sup>、R<sup>10</sup>及びR<sup>11</sup>が独立して(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>) 分枝鎖状アルキル、フェニルもしくは置換フェニルであるSiR<sup>9</sup>R<sup>10</sup>R<sup>11</sup>もしくはOSiR<sup>9</sup>R<sup>10</sup>R<sup>11</sup>、

R<sup>12</sup>及びR<sup>13</sup>が独立してH、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキルもしくは(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルカノイルであるNR<sup>12</sup>R<sup>13</sup>、

R<sup>14</sup>が(C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>) アルキル、フェニルもしくは置換フェ



ニルである  $S(O)R^{16}$  もしくは  $SO_2R^{14}$  ;

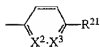
場合により  $O$ 、 $S$ 、 $SO$ 、 $SO_2$ 、 $NR^6$  もしくは  $SiR^6R^7$  から選ばれるヘテロ原子を含むことができ、ここで  $R^5$ 、 $R^6$  及び  $R^7$  は上記で定義された通りであり、場合によりハロ、ハロ ( $C_1-C_4$ ) アルコキシ、ヒドロキシ、( $C_3-C_8$ ) シクロアルキルもしくはシクロアルケニル、( $C_1-C_4$ ) アルカノイル、フェノキシ、置換フェノキシ、フェニル、置換フェニル、フェニルチオ、置換フェニルチオ又はシアノにより置換されていることができる直鎖状もしくは分枝鎖状 ( $C_1-C_{12}$ ) 飽和もしくは不飽和炭化水素鎖;

場合によりハロ、フェニル、置換フェニル、( $C_3-C_8$ ) シクロアルキルもしくはシクロアルケニル、フェノキシ又は置換フェノキシにより置換されていることができる ( $C_1-C_7$ ) アルコキシ; あるいは

場合によりハロ、フェニル、置換フェニル、( $C_3-C_8$ ) シクロアルキルもしくはシクロアルケニル、フェノキシ又は置換フェノキシにより置換されていることができる ( $C_1-C_7$ ) アルキルチオ;

である

式



の基

であるアリール

であるか、

あるいは

$Y-Z$  は一緒になって直鎖状もしくは分枝鎖状 ( $C_2-C_{11}$ ) 飽和も

しくは不飽和炭化水素鎖を形成し;

$W$  は  $O$ 、 $y$  が  $0 \sim 2$  の整数である  $S(O)_y$ 、又は  $NR^{24}$  であり、ここで  $R^{24}$  は  $H$ 、 $OH$ 、( $C_1-C_6$ ) アルキル、( $C_1-C_6$ ) アルコキシ、アリール、( $C_1-C_6$ ) アルカノイル、 $NR^{25}R^{26}$ 、ベンジル、又は場合により ( $C_1-C_6$ ) アルキル、( $C_1-C_6$ ) アルコキシ、ハロ、ハロ ( $C_1-C_6$ ) アルキルにより置換

されていることができるベンジルであり、 $R^{25}$ 及び $R^{26}$ は独立してH、 $(C_1-C_6)$ アルキル、アリール、アルカノイルであるか、又は窒素と一緒にモルホリノ、ピペリジニル、ピロリジニルのような飽和 $(C_3-C_7)$ 環を形成し；

Gは $(C_1-C_6)$ アルキル、アリール、 $(C_1-C_6)$ アルカノイル、 $NR^{25}R^{26}$ 、デューテロ $(C_1-C_6)$ アルキル、ハロ $(C_1-C_6)$ アルキル、ベンジル、又は場合により $(C_1-C_6)$ アルキル、 $(C_1-C_6)$ アルコキシ、ハロもしくはハロ $(C_1-C_6)$ アルキルにより置換されていることができるベンジルであり、ここで $R^{25}$ 及び $R^{26}$ は上記で定義された通りであるか；あるいは

W-Gと一緒にハロ、SH又は $NR^{25}R^{26}$ であり、ここで $R^{25}$ 及び $R^{26}$ は上記で定義された通りであり；

但し以下の化合物、

(1)  $R^1$ 及び $R^2$ がHであり、Y-Zと一緒にモープチルを形成する式1の化合物

は除かれる]

の化合物、ならびにそれらのN-オキシド類及び塩類。

2. Yが $-CH_2-$ である請求の範囲第1項の化合物。

3. Zがアリールである請求の範囲第1項の化合物。

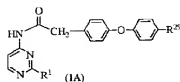
4. Zが置換フェニル基である請求の範囲第3項の化合物。

5. Zがハロ $(C_1-C_6)$ アルコキシ基により置換されたフェニルである請求の範囲第4項の化合物。

6. Zがフェノキシ又は置換フェノキシ基により置換されたフェニル基である請求の範囲第4項の化合物。

7. フェニル基が4-位において置換されている請求の範囲第4項の化合物。

8. 式1A



[式中、 $R^1$ はアルキルであり、 $R^{29}$ はハロ、ハロ( $C_1-C_4$ )アルキル；( $C_1-C_4$ )アルカノイル、CN及び $NO_2$ から成る群より選ばれた電子吸引性基である]

を有する請求の範囲第4項の化合物。

9.  $R^1$ がエチルであり、 $R^{29}$ が $CF_3$ 、CN又はC1である請求の範囲第8項の化合物。

10. 植物学的に許容し得る担体と組み合わせられた請求の範囲第1項の化合物を含む有害生物防除組成物。

11. 線虫の場所に線虫不活性化量の請求の範囲第1項の化合物を適用することを含む線虫の集団を抑制する方法。

12. 昆虫又はクモ形類の場所に昆虫又はダニの不活性化に有効な量の請求の範囲第1項の化合物を適用することを含む昆虫又はダニの集団を抑制する方法。

13. 有効量の請求の範囲第1項の化合物を病原体の場所に適用することを含む植物病原体を抑制する方法。

## 【発明の詳細な説明】

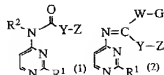
## N-(4-ピリジニル)アミド有害生物防除剤

本発明は殺線虫剤、殺虫剤、殺ダニ剤及び植物殺菌・殺カビ剤(plant fungicides)として有用な新規な化合物を提供する。

新規な殺線虫剤、殺虫剤、殺ダニ剤及び植物殺菌・殺カビ剤への差し迫った要求がある。価値のある殺線虫剤は典型的に高い哺乳類毒性を有し、高い比率で用いなければならない。低い比率で適用でき、低い哺乳類毒性を有する殺線虫剤は有意な進歩を与える。

ダニ及び昆虫は、現在用いられている殺ダニ剤及び殺虫剤に対する耐性を発現しつつある。節足動物における殺虫剤への耐性は広がっており、少なくとも400種が1種又はそれ以上の殺虫剤に耐性である。DDT、カルバメート類及び有機リン酸塩類などの古い殺虫剤のいくつかへの耐性の発現は周知である。しかし、より新しいピレスロイド殺虫剤及び殺ダニ剤のいくつかへの耐性でさえ発現した。同様に、極端病原体は現在用いられている殺菌・殺カビ剤への耐性を急速に発現しつつある。菌・カビの少なくとも50種がベンズイミダゾール殺菌・殺カビ剤に対する耐性を発現した。最初は畑におけるポテトの後期胴枯れ病(late blight)及びぶどうのうどん粉病(dourry mildew)の優れた抑制を示したアシルアラニン類などの最近導入された殺菌・殺カビ剤でさえ、耐性のために効率が低くなってきた。従って新規な殺虫剤、殺ダニ剤及び殺菌・殺カビ剤、ならびに特に新しい、又は非定型的な作用様式を有する化合物に対する要求がある。

本発明は式(1)及び(2)：



[式中、

R<sup>1</sup>はH、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>)分枝鎖状アルキル、(C<sub>3</sub>-C

7) シクロアルキル、(C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>) アルケニル、(C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>) 分枝鎖状アルケニル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルコキシ、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルコキシ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルコキシ、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキルチオ、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキルスルホニル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキルスルフィニル、ハロ又はフェニルであり；

R<sup>2</sup>はH、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>) 分枝鎖状アルキル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルカノイル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルコキシメチル、CH<sub>2</sub>SiR<sup>8</sup>R<sup>10</sup>R<sup>11</sup>、ヒドロキシメチル、ベンジ

ル、(C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>) シクロアルキルメチル又は  $\text{—}\overset{\text{T}}{\underset{\text{T R}^{7'}}{\text{P}}}^{\text{T R}^6}$  であり、ここ

でR<sup>8</sup>、R<sup>10</sup>及びR<sup>11</sup>は独立して(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>) 分枝鎖状アルキル、フェニル又は置換フェニルであり、各Tは独立してO又はSであり、R<sup>6</sup>及びR<sup>7</sup>は独立して(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>) 分枝鎖状アルキル、フェニル又は置換フェニルであり；

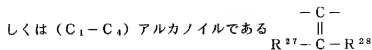
Yは

(1) 場合により(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキル、(C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>) アルケニル、

(C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>) アルキニル、分枝鎖状(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>) アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>) シクロアルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>) シクロアルケニル、ハロ、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルコキシ、ヒドロキシ、CN、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルカノイル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルコキシカルボニル、アリールが下記に定義される通りであるアリールオキシカルボニル、ヒドロキシ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルコキシ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキルにより置換されていることができる—CH<sub>2</sub>—、あるいは

(2) R<sup>27</sup>及びR<sup>28</sup>が独立してH、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルキル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>) アルコキシ、SH、S—低級アルキル、NH<sub>2</sub>、NH—低級アルキル、N、N—低級アルキル、O—低級アルキル、OH、モルホリノ、ピペリジニル、ピロリジニ

ル、チオモルホリノから選ばれるか、又は $R^{27}$ 及び $R^{28}$ が結合し、場合によりO、Sもしくは $NR^5$ から選ばれる1もしくは2個のヘテロ原子を含むことができる( $C_5-C_8$ )飽和もしくは不飽和環の一部を形成し、ここで $R^5$ がH、( $C_1-C_4$ )アルキルも



であり；

Zは

(1) 場合により( $C_1-C_4$ )アルキル、( $C_1-C_4$ )アルコキシ、ハロ( $C_1-C_4$ )アルキル、ハロ( $C_1-C_4$ )アルコキシ、ハロ、ヒドロキシもしくは( $C_1-C_4$ )アルカノイルから独立して選ばれる1つ又はそれ以上の基により置換されていることができる( $C_8-C_9$ )シクロアルキル又はシクロアルケニル；あるいは

(2) アリールが

(a) 場合により：

ハロ、

( $C_3-C_8$ )シクロアルキル、

( $C_3-C_8$ )シクロアルケニル、

フェノキシ、

置換フェノキシ、

フェニルチオ、

置換フェニルチオ、

フェニル、

置換フェニル、

$NO_2$ 、

$R^8$ が( $C_1-C_7$ )アルキル、ハロ( $C_1-C_7$ )アルキル、( $C_3-C_7$ )

分枝頭状アルキル、ハロ( $C_3-C_7$ )分枝鎖状アルキル、( $C_3-C_7$ )シクロアルキル、ハロ( $C_3-C_7$ )シクロアルキル、( $C_1-C_7$ )アルコキシ、ヒドロキシ

シ、フェニル、置換フェニル、フェノキシもしくは

は置換フェノキシである  $\begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}-\text{R}^8 \end{array}$ 、

$\text{R}^8$ がヒドロキシを除く以外は上記の通りに定義される  $\begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{O}-\text{C}-\text{R}^8 \end{array}$ 、

$\text{OH}$ 、

$\text{CN}$ 、

$\text{R}^9$ 、 $\text{R}^{10}$ 及び $\text{R}^{11}$ が独立して $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルキル、 $(\text{C}_3-\text{C}_6)$ 分枝鎖状アルキル、フェニルもしくは置換フェニルである $\text{SiR}^9\text{R}^{10}\text{R}^{11}$ もしくは $\text{OSiR}^9\text{R}^{10}\text{R}^{11}$ 、

$\text{R}^{12}$ 及び $\text{R}^{13}$ が独立して $\text{H}$ 、 $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルキルもしくは

$(\text{C}_1-\text{C}_8)$ アルカノイルである $\text{NR}^{12}\text{R}^{13}$ 、

$\text{R}^{14}$ が $(\text{C}_1-\text{C}_{10})$ アルキル、フェニルもしくは置換フェニルである $\text{S}(\text{O})\text{R}^{14}$ 、 $\text{SO}_2\text{R}^{14}$ もしくは $\text{OSO}_2\text{R}^{14}$ ；

場合により $\text{O}$ 、 $\text{S}$ 、 $\text{SO}$ 、 $\text{SO}_2$ 、 $\text{NR}^5$ もしくは $\text{SiR}^6\text{R}^7$ から選ばれるヘテロ原子を含むことができ、ここで $\text{R}^5$ 、 $\text{R}^6$ 及び $\text{R}^7$ は上記で定義された通りであり、そして場合によりハロ、ハロ $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルコキシ、ヒドロキシ、 $(\text{C}_3-\text{C}_8)$ シクロアルキルもしくはシクロアルケニル、 $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルカノイル、フェノキシ、置換フェノキシ、フェニル、置換フェニル、フェニルチオ、置換フェニルチオ又はシアノにより置換されていることができる直鎖状もしくは分枝鎖状 $(\text{C}_1-\text{C}_{12})$ 飽和もしくは不飽和炭化水素鎖；

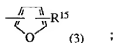
場合によりハロ、フェニル、置換フェニル、 $(\text{C}_3-\text{C}_8)$ シクロアルキルもしくはシクロアルケニル、フェノキシ又は置換フェノキシにより置換されていることができる $(\text{C}_1-\text{C}_7)$ アルコキシ；あるいは

場合によりハロ、フェニル、置換フェニル、 $(\text{C}_3-\text{C}_8)$ シクロアルキルもしくはシクロアルケニル、フェノキシ又は置換フェノキシにより置換されていることができる $(\text{C}_1-\text{C}_7)$ アルキルチオ；

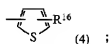
から独立して選ばれる1つ又はそれ以上の基により置換されていることができる

フェニル基；

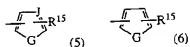
(b)  $R^{15}$ がH、ハロ、ハロメチル、CN、 $NO_2$ 、 $(C_1-C_4)$ アルキル、 $(C_3-C_4)$ 分枝鎖状アルキル、フェニル、 $(C_1-C_4)$ アルコキシである式(3)のフリル基



(c)  $R^{16}$ がH、ハロ、ハロメチル、CN、 $NO_2$ 、 $(C_1-C_4)$ アルキル、 $(C_3-C_4)$ 分枝鎖状アルキル、フェニル、 $(C_1-C_4)$ アルコキシ又はチエニルである式(4)のチエニル基



(d)  $R^{15}$ が(b)の節において定義された通りであり、JがN又はCHであり、GがO、 $NR^{17}$ 又はSであり、但しJがNでない場合、GはNRであり、ここで $R^{17}$ はH、 $(C_1-C_4)$ アルキル、 $(C_1-C_4)$ アルカノイル、フェニルスルホニル又は置換フェニルスルホニルである式(5)又は(6)の基



(e) 場合により置換されていることができるナフチル、ジヒドロナフチル、テトラヒドロナフチル及びデカヒドロナフチル；

場合により置換されていることができるインドリル；

1, 3-ベンゾジオキサソリル；

2, 6-ジメチル-4-モルホリニル；及び

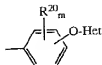
1-アダマンチル

から選ばれる基；

(f) mが4であり；各 $R^{20}$ が独立してH、ハロ、低級アルキル、低級アルコキシ、ハロアルキル、ハロアルコキシ、 $NO_2$ 、CN、低級アルキルカルボニル、 $S(O)R^{14}$ 、 $SO_2R^{14}$ もしくは $OSO_2R^{14}$ 、フェノキシ又は置換フェノキシであり、ここで $R^{14}$ は $(C_1-C_{10})$ アルキル、フェニル又は置換フェニルであり；但し $R^{20}$ の少なくとも2つ



はH及びFから選ばれ；Hetも場合によりハロ、低級アルキル、低級アルコキシ、ハロアルキル、ハロアルコキシ、NO<sub>2</sub>、CN及び低級アルキルカルボニルから選ばれる1つ又はそれ以上の基により置換されていることができるピリジニル、ピラジニル、ピリミジニル又はピリダジニルである式



の基；

(g) X<sup>2</sup>及びX<sup>3</sup>の1つがNであり、他がCR<sup>23</sup>であり；

R<sup>21</sup>が-T-R<sup>22</sup>、フェニル、置換フェニル、(C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>)アルキル、ハロ又はハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)アルキルであり、ここで

TはO又はSであり、

R<sup>22</sup>は(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>)分枝鎖状アルキル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>7</sub>)アルキル、ハロ(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>)分枝鎖状アルキル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルコキシ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、又はいずれの場合によりハロ、(C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>)アルキル、分枝鎖状(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>)アルキル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>7</sub>)アルキル、ヒドロキシ(C<sub>1</sub>-C<sub>7</sub>)アルキル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルコキシ、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルコキシ、フェノキシ、置換フェノキシ、フェニル、置換フェニル、CN、NO<sub>2</sub>、OH、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルカノイルオキシもしくはベンジルオキシから選ばれる最高3つの基により置換されていることができるナフチルもしくはフェニルであり；

R<sup>23</sup>は；

H、

ハロ、

(C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>)シクロアルキル、

(C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>)シクロアルケニル、

フェノキシ、

置換フェノキシ、

フェニルチオ、

置換フェニルチオ、

フェニル、

置換フェニル、

$\text{NO}_2$ 、

$\text{R}^9$ が $(\text{C}_1-\text{C}_7)$ アルキル、ハロ $(\text{C}_1-\text{C}_7)$ アルキル、 $(\text{C}_8-\text{C}_7)$ 分枝鎖状アルキル、ハロ $(\text{C}_8-\text{C}_7)$ 分枝鎖状アルキル、 $(\text{C}_8-\text{C}_7)$ シクロアルキル、ハロ $(\text{C}_8-\text{C}_7)$ シクロアルキル、 $(\text{C}_1-\text{C}_7)$ アルコキシ、フェニル、置換フェニル又はヒドロキシである



アセトキシ、

$\text{OH}$ 、

$\text{CN}$ 、

$\text{R}^9$ 、 $\text{R}^{10}$ 及び $\text{R}^{11}$ が独立して $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルキル、 $(\text{C}_8-\text{C}_4)$ 分枝鎖状アルキル、フェニルもしくは置換フェニルである $\text{SiR}^9\text{R}^{10}\text{R}^{11}$ もしくは $\text{OSiR}^9\text{R}^{10}\text{R}^{11}$ 、

$\text{R}^{12}$ 及び $\text{R}^{13}$ が独立して $\text{H}$ 、 $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルキルもしくは $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルカノイルである $\text{NR}^{12}\text{R}^{13}$ 、

$\text{R}^{14}$ が $(\text{C}_1-\text{C}_{10})$ アルキル、フェニルもしくは置換フェ

ニルである $\text{S}(\text{O})\text{R}^{14}$ もしくは $\text{SO}_2\text{R}^{14}$ ；

場合により $\text{O}$ 、 $\text{S}$ 、 $\text{SO}$ 、 $\text{SO}_2$ 、 $\text{NR}^5$ もしくは $\text{SiR}^6\text{R}^7$ から選ばれるヘテロ原子を含むことができ、ここで $\text{R}^5$ 、 $\text{R}^6$ 及び $\text{R}^7$ は上記で定義された通りであり、そして場合によりハロ、ハロ $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルコキシ、ヒドロキシ、 $(\text{C}_8-\text{C}_8)$ シクロアルキルもしくはシクロアルケニル、 $(\text{C}_1-\text{C}_4)$ アルカノイル、フェノキシ、置換フェノキシ、フェニル、置換フェニル、フェニルチオ、置換フェニルチオ又はシアノにより置換されていることができる直鎖状もしくは分枝鎖状 $(\text{C}_1-\text{C}_{12})$ 飽和もしくは不飽和炭化水素鎖；

場合によりハロ、フェニル、置換フェニル、( $C_3-C_8$ )シクロアルキルもしくはシクロアルケニル、フェノキシ又は置換フェノキシにより置換されていることができる( $C_1-C_7$ )アルコキシ；あるいは

場合によりハロ、フェニル、置換フェニル、( $C_3-C_8$ )シクロアルキルもしくはシクロアルケニル、フェノキシ又は置換フェノキシにより置換されていることができる( $C_1-C_7$ )アルキルチオ；

である

式



の基

であるアリール

であるか、

あるいは

Y-Zは一緒になって直鎖状もしくは分枝鎖状( $C_2-C_{11}$ )飽和もしくは不飽和炭化水素鎖を形成し；

WはO、yが0～2の整数であるS(O)<sub>y</sub>、又はNR<sup>24</sup>であり、ここでR<sup>24</sup>はH、OH、( $C_1-C_4$ )アルキル、( $C_1-C_4$ )アルコキシ、アリール、( $C_1-C_4$ )アルカノイル、NR<sup>25</sup>R<sup>26</sup>、ベンジル、又は場合により( $C_1-C_4$ )アルキル、( $C_1-C_4$ )アルコキシ、ハロ、ハロ( $C_1-C_4$ )アルキルにより置換されていることができるベンジルであり、R<sup>25</sup>及びR<sup>26</sup>は独立してH、( $C_1-C_4$ )アルキル、アリール、アルカノイルであるか、又は窒素と一緒にモルホリノ、ピペリジニル、ピロリジニルのような飽和( $C_3-C_7$ )環を形成し；

Gは( $C_1-C_4$ )アルキル、アリール、( $C_1-C_4$ )アルカノイル、NR<sup>25</sup>R<sup>26</sup>、デューテロ( $C_1-C_4$ )アルキル、ハロ( $C_1-C_4$ )アルキル、ベンジル、又は場合により( $C_1-C_4$ )アルキル、( $C_1-C_4$ )アルコキシ、ハロもしくはハロ( $C_1-C_4$ )アルキルにより置換されていることができるベンジルであり、ここでR<sup>25</sup>及びR<sup>26</sup>は上記で定義された通りであるか；あるいは

W-Gは一緒になってハロ、SH又は $\text{NR}^{25}\text{R}^{26}$ であり、ここで $\text{R}^{25}$ 及び $\text{R}^{26}$ は上記で定義された通りであり；

但し以下の化合物、

(1)  $\text{R}^1$ 及び $\text{R}^2$ がHであり、Y-Zが一緒になってモープチルを形成する式1の化合物は除かれる]

の化合物、ならびにそれらのN-オキシド類及び塩類を提供する。

本発明はまた、線虫不活性化量の上記で定義された式(1)又は(2)

の化合物を線虫の場所に適用することを含む、線虫の集団の抑制の方法を提供する。

本発明はまた、昆虫又はダニの不活性化に有効な量の式(1)又は(2)の化合物を昆虫又はクモ形類の場所に適用することを含む、昆虫又はダニの集団の抑制の方法を提供する。

本発明はまた、有効量の式(1)又は(2)の化合物を病原体の場所に適用することを含む、植物病原体の抑制の方法を提供する。

本書類を通じて他に記載がなければ温度はすべて度摂氏で示し、すべてのパーセンテージは重量パーセンテージである。

「ハロ」という用語はF、Cl、Br又はI原子を言う。

「アルコキシ」、「ハロアルキル」、「アルキルスルフィニル」及び「アルキルスルホニル」という用語は直鎖状及び分枝鎖状基を言う。

「置換フェニル」、「置換フェノキシ」、「置換フェニルチオ」及び「置換フェニルスルホニル」という用語は、フェニル環がハロ、( $\text{C}_1-\text{C}_{10}$ )アルキル、分枝鎖状( $\text{C}_8-\text{C}_6$ )アルキル、ハロ( $\text{C}_1-\text{C}_7$ )アルキル、ヒドロキシ( $\text{C}_1-\text{C}_7$ )アルキル、( $\text{C}_1-\text{C}_7$ )アルコキシ、ハロ( $\text{C}_1-\text{C}_7$ )アルコキシ、フェノキシ、置換フェノキシ、フェニル、置換フェニル、 $\text{NO}_2$ 、OH、CN、( $\text{C}_1-\text{C}_6$ )アルカノイル、ベンゾイル、( $\text{C}_1-\text{C}_4$ )アルカノイルオキシ、( $\text{C}_1-\text{C}_4$ )アルコキシカルボニル、フェノキシカルボニル又はベンゾイルオキシから独立して選ばれる最高3個の基により置換されているそのような基を言い、但

しそれ自身がこのリストからの基により置換されている置換フェニル、置換フェノキシ、置換フェニルチオ又は置換フェニルスルホニル基は合計で3個より多いフェニル環を含んではならない。かくして例えば4一位に

において4-クロロフェノキシ基により置換されたフェニル基は置換フェニルの定義に含まれる。

「置換ナフチル」及び「置換インドリル」という用語はハロ、ハロ( $C_1-C_4$ )アルキル、CN、NO<sub>2</sub>、( $C_1-C_4$ )アルキル、( $C_3-C_4$ )分枝鎖状アルキル、フェニル、( $C_1-C_4$ )アルコキシ又はハロ( $C_1-C_4$ )アルコキシから独立して選ばれる1個又はそれ以上の基により置換されたこれらの環系を言う。

「炭素環」という用語は5又は6個の炭素原子を含む飽和又は不飽和炭素環を言う。

「不飽和炭化水素鎖」という用語は1個又はそれ以上の不飽和の部位を含む炭化水素鎖を言う。

「HPLC」という用語は、高圧液体クロマトグラフィーを言う。

「置換アミノ」という用語は1又は2個の( $C_1-C_4$ )アルキル基、あるいは1個の( $C_1-C_4$ )アルカノイル基により置換されたアミノ基を言う。

「低級アルキル」という用語はC1～C6直鎖状炭化水素鎖、ならびにC3～C6分枝鎖状及び環状炭化水素鎖を言う。

「低級アルケニル」及び「低級アルキニル」という用語は、少なくとも1個の不飽和結合を含むC2～C6直鎖状炭化水素鎖及びC3～C6分枝鎖状炭化水素基を言う。

「低級アルコキシ」及び「低級アルキルチオ」という用語はO-低級アルキル及びS-低級アルキル基を言う。

「ハロアルキル」という用語は1個又はそれ以上のハロ原子により置換された低級アルキルを言う。

「ハロアルコキシ」という用語は1個又はそれ以上のハロ原子により置換された低級アルコキシ基を言う。

他に指示がなければ、同定されている種類から選ばれる1個又はそれ以上の置換基により基が置換されることができると述べられている場合、置換基はその種類から独立して選ばれることができるものとする。

式(1)の好ましい化合物は以下の種類を含む：

a) Yが $-CH_2-$ である式(1)の化合物；

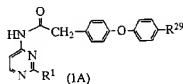
b) Zがアリールである式(1)の化合物；

c) Zがハロ（ $C_2-C_4$ ）アルコキシ基により置換されたフェニル基である式(1)の化合物；

d) Zがフェノキシ又は置換フェノキシ基により置換されたフェニル基である式(1)の化合物；

e) フェニル基が4-位において一置換されている前記の群c)及びd)のいずれかの化合物；

f) 式1A



[式中、 $R^1$ はアルキルであり、 $R^{29}$ は電子吸引性基、例えばハロ、ハロ（ $C_1-C_4$ ）アルキル；（ $C_1-C_4$ ）アルカノイル、CN、 $NO_2$ 又は $CF_3$ である]の化合物。

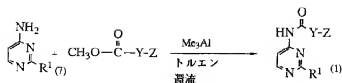
特に好ましいのは $R^1$ がエチルであり、 $R^{29}$ が $CF_3$ 、CN又はC1である式(1A)の化合物である。

### 合成

本発明の化合物は周知の化学的方法を用いて製造される。必要な出発材料は商業的に入手可能であるか、又はそれらは標準的方法を用いて容易に合成される。

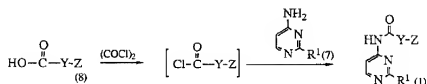
式(1)の化合物は以下のスキームに示される方法を用いて製造することができる：

### スキーム 1



スキーム 1 に示されている方法の場合、トルエン中のアミノピリミジン (7) の混合物に窒素下で、室温においてトリメチルアルミニウム溶液を加える。溶液を加温し、トルエン中のエステル溶液を加える。得られる混合物を還流し、次いで室温に冷まし、1 M の HCl の滴下によりクエンチする。次いで混合物を 1 N の水酸化ナトリウム中に注ぎ、ジエチルエーテル/ジクロロメタンの溶液で抽出し、無水硫酸ナトリウム上で乾燥し、濃縮する。

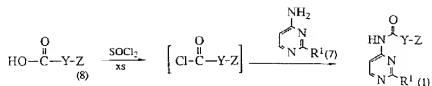
#### スキーム 2



スキーム 2 に示されている方法の場合、適した有機溶媒、例えば THF、メチレンクロリド又はキシレン中のカルボン酸 (8) の溶液に窒素下で、室温において少過剰のオキサリルクロリドを滴下する。混合物は

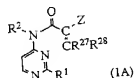
1～2 当量のピリジン又はトリエチルアミンも含むことができる。混合物を 30 分～2 時間撹拌した後、適した有機溶媒、例えば THF、メチレンクロリド又はキシレン中の溶液におけるアミン (7) を滴下する。混合物を 8～24 時間加熱還流し、次いで室温に冷まし、1 N の水酸化ナトリウムとエチルエーテルに分配する。水相をエチルエーテルで抽出する。合わせた有機物を水及び飽和塩化ナトリウム溶液で洗浄し、次いで乾燥し、濾過し、濃縮する。

#### スキーム 3



スキーム3に示されている方法の場合、酸誘導体(8)を過剰チオニルクロリド中で約2時間加熱還流する。次いで減圧により過剰のチオニルクロリドを除去する。次いで残留物に適した有機溶媒、例えばアセトニトリル、トルエン又はキシレン中のアミン(7)及び場合により約2当量のトリエチルアミンの溶液を加える。混合物を8〜24時間加熱還流し、次いで室温に冷まし、1Nの水酸化ナトリウムとエチルエーテルに分配する。水相をエチルエーテルで抽出する。合わせた有機物を水及び飽和塩化ナトリウム溶液で洗浄し、乾燥し、濾過し、濃縮する。

式

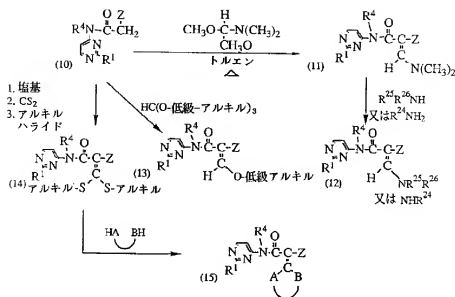


の化合物をスキーム4に示される方法を用いることにより製造すること

ができる：

スキーム4

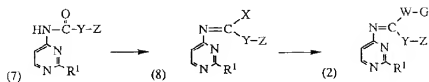




メチレンが  $\text{N}(\text{CH}_3)_2$  により置換されているメチレン誘導体 (11) は  $\text{N}-(4\text{-ピリミジニル})$  アミド (10) をトルエンの存在下で加熱しながら適した  $\text{N}, \text{N}$ -ジアルキルカルボキシアミドジアルキルアセタールで処理することにより製造することができる。  $\text{N}, \text{N}$ -ジアルキル誘導体 (11) を、適したアミンで処理することによりそれらの  $\text{NHR}^{24}$  誘導体に転化し、(12) を得ることができる。  $\text{N}-(4\text{-ピリミジニル})$  アミド類 (10) をトリアルキル-オルトカルボキシレート類で処理するとさらにメチレン誘導体 (13) を与える。  $\text{N}-(4\text{-ピリミジニル})$  アミド類 (10) は  $\text{S}, \text{S}$ -ケテンアセタール類 (14) に、及び場合により環系 (15) に転化することもできる。

$\text{W} = \text{O}, \text{S}$  又は  $\text{NR}^{24}$  である式 (2) の化合物は、スキーム 5 に示される方法を用いて製造することができる：

スキーム 5

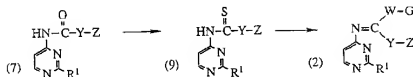


カルボニル誘導体 (7) を  $\text{PCl}_5, \text{PBr}_5, \text{POCl}_3, \text{POBr}_3$ 、オキザリ

ルクロリド又は $\text{SOCl}_2$ などの試薬で処理することにより対応するイミドイルハライド(8)に転化する。イミドイルハライド(8)を次いで例えば $\text{H}_2\text{S}$ 、 $\text{OR}^-$ 、 $\text{SR}^-$ 、 $\text{NH}_2\text{R}^{24}$ 、 $\text{NHR}^{25}\text{R}^{26}$ 又は $\text{NHR}^{24}\text{NHR}^{25}\text{R}^{26}$ などの求核試薬と反応させ、所望の式(2)の化合物を得ることができる。

W-GがSHであるか、又はWがSであり、Gがアルキルもしくはベンジルである式(2)の化合物は、スキーム6に示される方法を用いて製造することができる：

スキーム 6

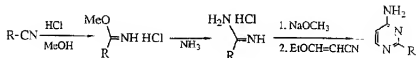


カルボニル誘導体(7)をLawessonの試薬又は $\text{P}_2\text{S}_5$ で処理して対応するチオン(9)を得る。次いでチオンをアルキルハライド又はベンジルハライドを用いてアルキル化し、所望の式(2)の化合物を得る。

#### 出発材料

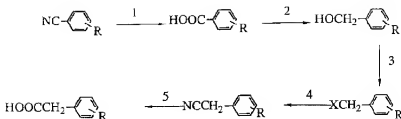
式(7)のビリミジン-4-アミン出発材料は、以下のスキーム7に示される方法を用いて製造することができる：

スキーム 7



式(8)のカルボン酸類も従来の方法を用いて、例えば以下のスキーム8に示される古典的鎖-延長法を用いて容易に製造される：

スキーム 8

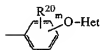


段階1において、ニトリルのKOH加水分解は対応するカルボン酸を与える。段階2において、カルボン酸の水素化アルミニウムリチウム還元はアルコールを与える。別の場合、対応するアルデヒドのナトリウムボロハイドライド還元によりアルコールを得ることができる。段階3に示されるハロゲン化は、例えばチオニルクロリドを用いた塩素化であることができる。段階4においてハライドをNaCNで処理するとニトリルを得る。段階5において、ニトリルの加水分解はフェニル酢酸誘導体を与える。

Zが式



の基である式(8)のカルボン酸誘導体は、類似の方法を用いて製造することができる。Zが式



の基である式(8)のカルボン酸誘導体は、p-ヒドロキシフェニル酢酸を適したクロロ置換ヘテロ環式化合物と反応させることにより製造することができる。

式(1)の化合物のN-オキシド類及び塩類は、通常の方法で得られる。

### 実施例

以下の表は、前記のスキームに示されている方法により製造された式(1)の化合物を同定している。代表的化合物の製造を示す詳細な実施例を表の後に示す。



化合物	Y	Z	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	融点°C
1	CH <sub>2</sub>		CH <sub>3</sub>	H	111-112
2	CH <sub>2</sub>		CH <sub>3</sub>	H	154
3	CH <sub>2</sub>		CH <sub>3</sub>	H	154-155
4	CH <sub>2</sub>		SC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	124-126
5	CH <sub>2</sub>		Ph	H	147-149
6	CH <sub>2</sub>		SC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	130-132
7	CH <sub>2</sub>		Ph	H	106-108
8	CH <sub>2</sub>		CH <sub>3</sub>	H	油
9	CH <sub>2</sub>		Et	H	82-84
10	CH <sub>2</sub>		Et	H	84-86
11	CH <sub>2</sub>		Et	H	ワックス
12	CH <sub>2</sub>		Et	H	ガラス
13	CH <sub>2</sub>		Et	H	167-169
14	CH <sub>2</sub>		Et	H	193-194
15	CH <sub>2</sub>		<i>c</i> -Pr	H	93-94
16	CH <sub>2</sub>		<i>c</i> -Pr	H	油
17	CH <sub>2</sub>		Et	H	88-89
18	CH <sub>2</sub>		<i>n</i> -Pr	H	106
19	CH <sub>2</sub>		<i>n</i> -Pr	H	81-83
20	CH <sub>2</sub>		<i>n</i> -Bu	H	92-94
21	CH <sub>2</sub>		<i>n</i> -Bu	H	87-88
22	CH <sub>2</sub>		<i>c</i> -Bu	H	103-106
23	CH <sub>2</sub>		<i>c</i> -Bu	H	77-78
24	CH <sub>2</sub>		<i>i</i> -Bu	H	120-122

化合物	Y	Z	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	融点 °C
25	CH <sub>2</sub>		<i>n</i> -Bu	H	ワックス
26	CH <sub>2</sub>		H	H	95
27	CH <sub>2</sub>			H	181-182
28	CH <sub>2</sub>		H	H	163
29	CH <sub>2</sub>		<i>n</i> -Pr	H	油
30	CH <sub>2</sub>		<i>i</i> -Pr	H	93-95
31	CH <sub>2</sub>		<i>i</i> -Pr	H	77-79
32	CH <sub>2</sub>		Et	H	油
33			Et	H	油
34*		<i>n</i> -C <sub>17</sub> H <sub>35</sub>	Et	H	82-83
35	CH <sub>2</sub>		Et	H	119-121
36	CH <sub>2</sub>		Et	H	61-62
37	CH <sub>2</sub>		Et	H	油
38	CH <sub>2</sub>		CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub>	H	油
39	CH <sub>2</sub>		CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub>	H	油
40	CH <sub>2</sub>		Et	H	113-115
41	CH <sub>2</sub>		Et	H	64-65
42	CH <sub>2</sub>		Et	H	64-66
43	CH <sub>2</sub>		Et	H	油
44	CH <sub>2</sub>		Et	H	64-66
45	CH <sub>2</sub>		Et	H	油
46	CH <sub>2</sub>		Et	H	油
47	CH <sub>2</sub>		Et	H	油
48	CH <sub>2</sub>		Et	H	87-89
49	CH <sub>2</sub>		Et	H	油

\* 特許請求の化合物ではない

化合物	Y	Z	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	融点 °C
50	CH <sub>2</sub>		Et	H	
51	CH <sub>2</sub>		<i>c</i> -Pr	CH <sub>3</sub>	

表 II

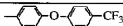
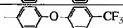
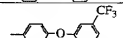
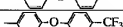

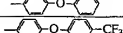


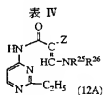
化合物	Y	Y-Z	W-G	R <sup>1</sup>	融点 °C
52	CH <sub>2</sub>		O-CH <sub>3</sub>	<i>c</i> -Pr	油

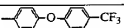
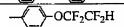
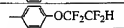
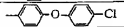
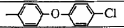
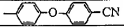
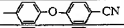
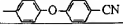
表 III



化合物	Y	Z	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	融点 °C
53	CH <sub>2</sub>		C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	ガラス
54	CH <sub>2</sub>		Cl	H	154-156
55	CH <sub>2</sub>		C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	108-109
56	CH <sub>2</sub>		C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	
57	CH <sub>2</sub>		C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	
58	CH <sub>2</sub>		C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	
59	CH <sub>2</sub>		<i>t</i> -Bu	H	121-122
60	CH <sub>2</sub>		<i>t</i> -Bu	H	67-68
61	CH <sub>2</sub>		C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	
62	CH <sub>2</sub>		<i>t</i> -Bu	H	108-111
63	CH <sub>2</sub>		CH <sub>3</sub>	H	110-112
64	CH <sub>2</sub>		C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	
65	CH <sub>2</sub>		<i>n</i> -Bu	H	68-72
66	CH <sub>2</sub>		<i>c</i> -Bu	H	64-69

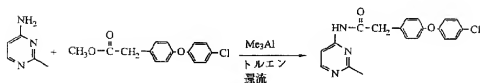
化合物	Y	Z	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	融点℃
67	CH <sub>2</sub>		<i>n</i> -Pr	H	<72
68	CH <sub>2</sub>		H	H	
69	CH <sub>2</sub>		CH <sub>3</sub>	H	80-84
70	CH <sub>2</sub>		CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub>	H	
71	CH <sub>2</sub>		<i>n</i> -Bu	H	
72	CH <sub>2</sub>		<i>i</i> -Pr	H	油



化合物	R <sup>25</sup>	R <sup>26</sup>	Z	融点℃
73	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>		
74	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>		油
75	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		油
76	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>		
77	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		
78	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>		80-82
79	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		
80	H	CH <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>		油

## 実施例 1

## (化合物 1)

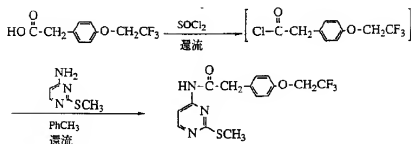


ヘキサン中のトリメチルアルミニウムの 2.0 M 溶液 (2.0 mL、4.0 ミリモル) を 15 mL のトルエン中の 4-アミノ-2-メチルピリミジン (0.394 g、3.6 ミリモル) の混合物に、窒素雰囲気下に、室温において滴下した

得られる混合物を室温で15分間攪拌し、ヒートガンを用いてわずかに加熱し、2 mLのトルエン中のエステルで処理し、次いで加熱還流した。終夜（17時間）還流した後、反応混合物を室温に冷まし、8 mLの1 MのHClを注意深く滴下することによりクエンチし、1 Nの水酸化ナトリウム（75 mL）中に注ぎ、ジエチルエーテル／ジクロロメタンの2：1溶液（3 × 100 mL）で抽出した。合わせた有機抽出物を水（1 × 100 mL）、飽和塩化ナトリウム（1 × 100 mL）で洗浄し、無水硫酸ナトリウム上で乾燥し、減圧下で濃縮して1.12 gの黄色油を得た。粗生成物をシリカゲル上のクロマトグラフィーにより精製し（mp 1 c）、70%ヘキサン／30%酢酸エチルで溶離した。これにより0.583 gの生成物を白色固体として得た（46%収率）。

## 实施例 2

(化合物 4)



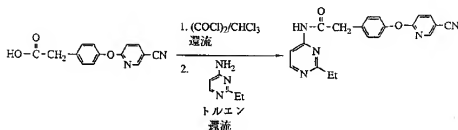
フェニル酢酸（1.288g、5.5ミリモル）及び過剰のチオニルクロリド（10mL）の溶液を60分間還流させた。過剰のチオニルクロリドを減圧下で除去した。酸クロリドをジクロロメタン中に取り上げ、次いで濃縮して残留チオニルクロリドを除去した（2回）。次いで酸クロリドを10mLのトルエン中の4-アミノ-2-メチルチオピリミジン（0.706g、5.0ミリモル）の溶液で処理し、得られる混合物を加熱還流した。終夜（16時間）還流した後、反応混合物を室温に冷まし、1Nの水酸化ナトリウム（75mL）中に注ぎ、次いでジエチルエーテル/ジクロロメタンの2:1溶液（3×100mL）で抽出した。合わせた有機抽出物を水（1×100mL）、飽和塩化ナトリウム（1×100mL）で洗浄し、無水硫酸ナトリウム上で乾燥し、次いで減圧下で濃縮して2



、20 gの黄色油を得た。粗生成物をシリカゲル上のクロマトグラフィーにより精製し（m p l c）、75%ヘキサン／25%酢酸エチルで溶離した。これにより1.583 gの生成物を黄色固体として得た（89%収率）。

### 実施例 3

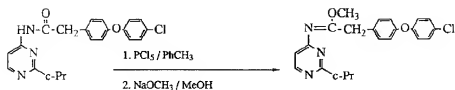
#### (化合物13)



10 mLのクロロホルム中のフェニル酢酸（1.398 g、5.5ミリモル）の溶液を過剰のオキサリルクロリド（5 mL）で処理し、得られる混合物を加熱還流した。60分間還流させた後、反応混合物を減圧下で濃縮した。酸クロリドをクロロホルム中に取り上げ、再濃縮した。10 mLのトルエン中の酸クロリドの溶液を4-アミノ-2-エチルピリミジンで1度に処理し、得られる混合物を加熱還流した。終夜（17時間）還流した後、反応混合物を室温に冷まし、1 Nの水酸化ナトリウム（100 mL）中に注ぎ、ジエチルエーテル／ジクロロメタンの2：1溶液（3×100 mL）で抽出した。合わせた有機抽出物を水（1×100 mL）、飽和塩化ナトリウム（1×100 mL）で洗浄し、無水硫酸ナトリウム上で乾燥し、次いで減圧下で濃縮して1.65 gの褐色油を得た。粗生成物をシリカゲル上のクロマトグラフィーにより精製し（m p l c）、70%ヘキサン／30%酢酸エチルで溶離した。これにより0.819 gの生成物を黄色固体として得た（46%収率）。

### 実施例 4

## (化合物52)



10 mLのトルエン中のアミドの溶液に5塩化リンを加え、得られる混合物を45℃に加熱した。45～50℃で60分間攪拌した後、混合物を真空中で濃縮した。5 mLのメタノール中のイミドイルクロリドの溶液を、5 mLのメタノール中のナトリウムメトキシドの溶液に加え、得られる混合物を加熱還流した。約18時間還流した後、混合物を50 mLの水の中に注ぎ、1 MのHClを用いてpH 5～6とし、メチレンクロリド(2×50 mL)及び酢酸エチル(1×50 mL)で抽出した。合わせた有機物を飽和塩化ナトリウム溶液(1×50 mL)で洗浄し、乾燥し(硫酸ナトリウム)、ろ過し、濃縮して0.57 gの黄色油を得、それを分取HPLC(C<sub>18</sub>カラム)上で精製し、90%CH<sub>3</sub>CN/10%H<sub>2</sub>Oを用いて溶離した。これは63 mgの生成物を無色の油として与えた。

## 殺虫剤及び殺ダニ剤用途

式(1)及び(2)の化合物は複数の昆虫及びダニ類に対する活性を示す。さらに特定的には、化合物は同翅類(Homoptera)の昆虫のメンバーであるメロン・アフィド(melon aphid)に対する活性を示す。同翅類の他のメンバーにはリーフホッパー(leaphoppers)、アブラムシ(planthoppers)、

ピア・ビスラ(pear pycilla)、アップル・サッカー(apple sucker)、スケール・インセクト(scale insects)、ホワイトフライ(whiteflies)、スピットル・バク(spittle bugs)、ならびに多数の他の宿主特異的なアフィド種が含まれる。アザミウマ類(Thysanoptera)のメンバーであるグリーンハウス・トリプ(greenhouse thrips)に対する活性も観察された。化合物は鱗翅類(Lepidoptera)の昆虫のメンバーであるサザン・アーミーワーム(

Southern armyworm) に対する活性も示す。この目の他の代表的メンバーはコズリング・モス (codling moth)、カットワーム (cutworm)、クロス・モス (clothes moth)、インディアンミール・モス (Indian meal moth)、リーフ・ローラー (leaf rollers)、コーン・イアワーム (corn earworm)、ユーロピアン・コーン・ボーラー (European corn borer)、キャベツ・ワーム (cabbage worm)、キャベツ・ルーパー (cabbage looper)、コットン・ボールワーム (cotton bollworm)、バグワーム (bagworm)、イースタン・テント・キャタピラ (eastern tent caterpillar)、ソド・ウェブワーム (sod webworm) 及びフォール・アーミーワーム (fall armworm) である。

式(1)及び(2)の化合物は昆虫及びダニ類の集団を減少させるために有用であり、昆虫又はダニ集団を阻害する方法において用いられ、その方法は、昆虫又はダニの場所に有効昆虫-もしくはダニ-不活性化

量の式(1)の化合物を適用することを含む。昆虫又はダニ類の「場所」は本明細書において、昆虫又はダニ類が生存する、あるいはそれらの卵が存在する環境を言い、それらを取り巻く空気、それらが食する食物又はそれらが接触する物を含む。例えば植物-摂食昆虫又はダニ類は、昆虫又はダニ類が食する植物の部分、特に葉に活性化化合物を適用することにより抑制することができる。化合物は繊維物、紙、保存穀物又は種子に活性化化合物を適用することにより、そのような物質を保護するためにも有用であり得ることが意図されている。「昆虫又はダニの阻害」という用語は、生存している昆虫又はダニ類の数の減少；あるいは生育可能な昆虫又はダニの卵の数の減少を言う。化合物により達成される減少の程度はもちろん、化合物の適用比、用いられる特定の化合物、及び標的昆虫もしくはダニの種に依存する。少なくとも昆虫-不活性化又はダニ-不活性化量が用いられなければならない。「昆虫-不活性化量」及び「ダニ-不活性化量」という用語は、処理される昆虫又はダニの集団において測定可能な減少を引き起こすのに十分

な量を述べるために用いられる。一般に約1～約1000ppmの範囲の量の活性化合物が用いられる。

上記で同定された化合物をいくつかを、8つの種に対する殺虫、殺ダニ及び殺線虫活性につき試験した。結果を以下の表で報告し、そこにおいて以下の略字を用いる：

ALHはアスター・リーフホッパー (aster leafhopper) を言い、

BAWはビート・アーミーワーム (beat armyworm) を言い、

CAはコットン・アフィドを言い、

NEMはピーナツ・ルートノット・ネマトード (peanut rootknott nematode) を言い、

SCRWはサザン・コーン・ルートワーム (southern corn rootworm) を言い、

TBWはタバコ・バズワーム (tobacco budworm) を言い、

TSSMは2点スパイダー・マイト (two spotted spider mite) を言い、

GECRはジャーマン・コックローチ (German cockroach) を言う。

殺虫活性の評価を行う場合、各試験化合物を400ppmの溶液として調製し、次いでこの溶液を水で希釈してもっと低い濃度を得た。400ppmの溶液は水中のTween 20 (ポリオキシエチレン (20) ソルビタンモノラウレート) の0.05%溶液の19.2mLを0.8mLのアセトン/EtOH (9/1) 中の8mgの化合物の溶液と合わせることで調製した。

アスター・リーフホッパー (マクロステレス・ファシフロンス (Macrosteltes fasciifrons)) に対する活性は以下の通りに試験した。試験は400ppm及び50ppmの濃度を用いて行った。綿の灯心を含む1オンスのプラスチックカップに平皿ノズルを用いて0.4mLの調製材料を噴霧した。過剰の水分は蒸発させた。次いで二酸化炭素で麻酔された5～10匹のリー

フホッパーの成虫を各カップに加えた。カップに蓋をし、室温で24時間保持した。次いでパーセント死亡率を決定した。

ビート・アーミーワーム (スポドプテラ・エクシクア (*Spodoptera exiqua*)) に対する活性は以下の通りに評価した。試験は400ppm及び50ppmの濃度を用いて行った。汎用鱗翅類人工飼料を5%の非栄養寒天を用いて半分の濃度に希釈した。8mLのこの飼料材料を1オンスの飼料カップ中に分配した。処理の1時間前に35~40個の卵を飼料表面上に分配した。次いでカップに平扇ノズルを介して調製された材料を噴霧した。処理されたカップを空気乾燥してからプラスチックの蓋で密封した。カップを室温で6日間保持した。次いで生存及び死亡幼虫の合計数及び生存幼虫の大きさに基づいて活性を評価した。

コットン・アフィド (アフィス・ゴシビ (*Aphis gossypii*)) 及び2点スパイダー・マイト (テトラニクス・ウルチカエ (*Tetranychus urticae*)) に対する活性は以下の通りに評価した。金色曲がり首かぼちゃの木を子葉が広がった段階まで生育させた (約6~8日)。試験材料の適用の16~24時間前に、ストックコロニー (stock colony) から切断された感染葉を移すことにより、植物にコットン・アフィド及び2点スパイダー・マイトを感染させた。試験材料の噴霧適用の直前に、移された葉をかぼちゃの木から除去する。試験は400ppm及び50ppmの濃度を用いて行う。17psiにおいて噴霧スプレーを用い、植物に試験溶液を噴霧する。葉の両面を流れ落ちるまで濡れ、次いで乾燥させる。各化合物の活性を処理の3日後に決定した。活性は溶媒のみを噴霧された植物に存在するマイト/アフィドに基づくパーセントとして評価した。

ビーナツ・ルートノット・ネマトード (メロイドジン・アレナリア (*Meloidogyne arenaria*)) に対する活性は以下の通りに評価した。5個の未処理のキュウリの種子を透明の1オンスのカップの底に置き、20gの清浄な白色の砂を加え、台の上で回転させながらカップに噴霧し、砂上に

1. 0 mLの400 ppm溶液を堆積させた。各カップに300～500個のネマトードを含む脱イオン水を2.5～3.0 mL分配した。カップを76～85 °Fの温度及び50～60%の周囲湿度において環境生育室 (environmental growth chamber) に10～12日間保持した。10～12日後、カップを反転させ、ネマトード死亡率及びキュウリの木に対する摂食損傷を観察することによりカップを評価した。

サザン・コーン・ルートワーム (ディアブロチカ・ウンデシムクタ・ホワードイ Barber) への活性を、16 gの無菌の土壌中にコーンの穀粒を含むカップにあらかじめ決められた濃度の試験化合物を含む1 mLの試験溶液を加えることにより評価した。これは24 ppmの土壌濃度を与える。1.5～2時間の乾燥の後、5匹の第4令コーン・ルートワーム幼虫を各カップに加えた。カップの中身を皿の上にあげ、生存ルートワームに関して土壌を検査することにより、3～4日目に死亡率を測定した。

タバコ・バズワーム (ヘリオチス・ビレセンス *Heliothis virescens*) に対する活性は以下の通りに評価した。汎用鱗翅類飼料材料を5%の非栄養寒天を用いて半分の濃度に希釈した。8 mLのこの飼料材料を1オンスの飼料カップのそれぞれに分配した。処理の1時間前に18～20個の卵を飼料表面に分配した。次いでカップ

に平皿ノズルを介して調製された材料を噴霧した。試験は400 ppm及び50 ppmの濃度を用いて行った。処理されたカップを空気乾燥してからプラスチックの蓋で密封した。カップを室温で6日間保持した。次いで生存及び死亡幼虫の合計数、ならびに生存幼虫の大きさに基づいて活性を評価した。

ジャーマン・コックローチ (ブラテラ・ゲルマニクス *Blattella germanica*) に対する活性は以下の通りに評価した。8 mLのアルファルファに基づく緑昆虫飼料材料を1オンスの飼料カップに分配した。次いでカップに平皿ノズルを介して調製された材料を噴霧した。試験は400 ppm及び50 ppmの濃度を用いて行った。処理されたカップを24時間空気乾燥し、

5匹の第3令後期又は第4令初期のジャーマン・コックローチに感染させた。カップに蓋をし、76～85℃の温度において環境生育室で10日間保持した。次いで生存及び死亡昆虫の合計数に基づいて活性を評価した。

殺虫剤、殺ダニ剤及び殺線虫剤データ (パーセント死亡率)								
化合物 番 号	ALH 400 ppm	BAW 400 ppm	CA 400 ppm	RKN 400 ppm	SCRW 400 ppm	TBW 400 ppm	TSSM 400 ppm	GEGR 400 ppm
1	0	100	100	100	100	100	100	100
5	0	30	0	0	0	0	0	0
6	100	100	100	0	100	90	0	60
7	0	60	100	0	0	60	0	60
8	100	0	100	0	0	0	0	40
9	100	100	100	0	0	100	0	0
10	100	100	100	90	100	100	100	100
11	80	100	100	80	100	100	100	100
12	100	100	100	100	100	100	100	100
13	0	100	100	100	0	100	100	60
14	100	100	100	0	0	80	0	0
17		100	100	100	100	100	100	100
18		100	100	100	0	80	80	20
19		100	100	100	100	100	100	100
20		100	0	80	100	0	0	0
21		100	100	90	0	100	100	100
22		100	100	100	100	0	100	80
23		100	100	100	0	100	100	100
24		100	90	0	100	100	60	0
25		100	100	100	100	100	100	100
27		0	100	0	0	0	0	0
28		0	100	0	0	0	0	0
29		100	100	0	0	100	100	100
30		100	100	100	100	90	100	80
31		100	100	0	0	100	100	100
32		100	100	100	0	100	100	60
33		0	80	0	0	0	40	20
34		0	0	0	0	0	0	20
35		100	100	100	100	60	100	80
36		100	40	100	0	100	0	40
37		100	0	0	0	100	0	100
38		0	0	0	0	0	0	0
39		100	100	100	0	100	100	100



40		20	60			40	0	
41		100	100			40	100	
42		40	100			0	100	
43		60	100			60	100	
44		100	100			0	90	
45		100	100			0	100	
46		0	0			0	0	
47		100	100			40	100	
48		0	100			20	100	
49		100	100			40	100	
50		60	100			40	100	
53	90	100	100	100	100	100	100	80
54	0	100	0	0	0	60	0	0
55	100	100	100	100	100	80	100	100
59	80	100	100	0	100	100	0	100
60	100	100	100	100	100	100	100	100
62	80	100	100	0	100	100	100	100
63	60	100	100	0	0	100	100	100
65	0	100	100		0	100	100	100
66	40	100	100		100	100	100	100
67	60	100	100	100	100	100	100	100
68	0	0	0	100	0	100	0	0
69	40	80	0		0	80	0	0
70	0	100	90	0	0	60	80	100
71	0	100	0	0	0	60	0	100
72		0	100	100	100	100	100	100
73	100	100	100	100	100	100	100	100
76	100	100	100	100	100	100	80	80
78	60	100	80	100	0	100	80	80
79	80	100	100	100	100	100	100	100
80	60	100	100	100	100	100	100	100

## 殺線虫利用途

本発明の化合物は線虫類の集団の減少に有用である。従って本発明の重要な側面は線虫の集団の阻害の方法であり、それは線虫の場所に有効線虫不活性化量の式(1)又は(2)の化合物を適用することを含む。「線虫の阻害」という用語は、生存線虫類の数の減少を言う。化合物により達成される減少の程度は、化合物の適用比、用いられる特定の化合物及び標的種に依存する。少なくとも線虫不活性化量が用いられなければならない。「線虫不活性化量」という用語は、

処理された線虫の集団において測定可能な減少を引き起こすのに十分な量を述べるために用いられる。

方法は殺線虫剤の適用に関する標準的方法に従って行われる。一般に1～10 lbs／エーカーの適用比において優れた殺線虫活性を期待することができる。化合物は組成物の節において以下に記載する通りに調製することができる。分散液として調製される場合、殺線虫剤は典型的に水性ドレンチ類として成長中の植物の周囲に適用され、又は灌漑系を介してより広く(incrementally)適用される。顆粒として適用される場合、殺線虫剤を植樹の前に土壌に挿入することができ、あるいは種子の列の上に帯状に適用することができ、あるいはばらまいてから土壌中に挿入することができ、あるいは定着した作物への側面施用(side dressing)として用いることができる。

#### 殺菌・殺カビ剤用途

本発明の化合物は菌・カビ、特に植物病原体を抑制することが見いだされた。植物の菌・カビ病の処置に用いられる場合、化合物は病気阻害及び植物許容量で植物に適用される。本明細書で用いられる「病気阻害

及び植物許容量」という用語は、抑制が望まれている植物の病気を抑圧又は阻害するが、植物に有意に毒性でない本発明の化合物の量を言う。この量は一般に約1～1000ppmであり、10～500ppmが好ましい。化合物の正確な必要濃度は、抑制されるべき菌・カビ病、用いられる調剤の型、適用の方法、特定の植物種、気候の状態などと共に変化する。適した適用比は典型的に0.25～4lb／Aの範囲にある。本発明の化合物は保存穀物及び他の非植物の場所を菌・カビの感染から保護するために用いることもできる。

#### 温室試験

実験室で以下の実験を行い、本発明の化合物の殺菌・殺カビ効率を決定した。

8mgの化合物を2mLのアセトンに、必要なら超音波処理を用いて溶解することにより、試験化合物を適用のために調製する。(8mg／2mL)試料の0.5mLのアリコート第2の容器に取り出し、第1の容器に6mg／1.5mLを残す。第2の容器に1.5mLのアセトンを加え、内容物を混合し、(2m

g/2 mL) 試料の0.5 mLのアリコートを第3の容器に取り出し、第2の容器に1.5 mg/1.5 mLを残す。第3の容器に1.5 mLのアセトンを加え、内容物を混合し、(0.5 mg/2 mL) 試料の0.5 mLのアリコートを第4の容器に取り出し、第3の容器に0.375 mg/1.5 mLを残す。第4の容器に1.5 mLのアセトンを加え、内容物を混合し、0.5 mLのアリコートを取り出して捨て、0.09375 mg/mLを第4の容器に残す。4つの容器のそれぞれに、水中のTriton X 100の110 ppm溶液を13.5 mL加える。最終的調剤は10%のアセトン、

100 ppmのTriton X 100及び400、100、25及び6、25 ppmの試験化合物を含む。

調製された試験化合物を葉スプレーにより適用した。以下の植物病原体及びそれらに対応する植物を用いた。

病原体	以下の表における 名称	宿主
エリシフェ・グラミニス・トリチシ ( <i>Erysiphe graminis tritici</i> ) (うどん粉病)	ERYSGT	小麦
ピリクラリア・オリザエ ( <i>Pyricularia oryzae</i> ) (稲肩枯れ病)	PYRIOR	稲
ブクシニア・レコンジタ・トリチシ ( <i>Puccinia recondita tritici</i> ) (葉さび病)	PUCCRT	小麦
レプトスファエリア・ノドルム ( <i>Leptosphaeria nodorum</i> ) (コムギふ枯病(glume blotch))	LEPTNO	小麦
プラスモバラ・ビチコラ ( <i>Plasmopara viticola</i> ) (べと病)	PLASVI	ぶどう

調製された専門的化合物を宿主植物の葉の表面全体（又は切り取った葉果）上に、流れ落ちる程噴霧した。各宿主植物の1個の容器を蒸発フード内の、回転する高い台の上に置いた。試験溶液を葉の表面全体に噴

霧した。すべての処理液を乾燥させ、2～4時間以内に植物に適宜、病原体を接種した。

以下の表は、この実験で評価した場合の本発明の典型的化合物の活性を示す。病気の抑制における試験化合物の効率は以下の尺度を用いて評価した。

- 0           = 特定の生物に対して試験しなかった  
—          = 400 ppmにおいて0～19%抑制

+ = 400 ppmにおいて20～89%抑制

++ = 400 ppmにおいて90～100%抑制

+++ = 100 ppmにおいて90～100%抑制

# 殺菌・殺カビ剤データ

化合物 番 号	ERYSGT	PYRJOR	PUCCRT	LEPTNO	PLASVI
1	-	++	++	++	++
2	+	+	++	++	++
3	+++	+	++	++	++
4	+	+	+++	+++	+
5	+	-	-	+	+
6	+	+++	+	+++	++
7	+	-	+	+	+++
8	++	+++	+	+++	+++
9	+++	+++	++	++	+++
10	+++	+++	++	++	+++
11	+++	++	++	+++	+
12	+++	++	++	+++	+++
13	++	+	++	+	+++

化合物 番 号	ERYSGT	PYRJOR	PUCCRT	LEPTNO	PLASVI
14	++	+	+	++	++
15	+	++	++	++	++
16	+	+	++	++	+++
17	+	++	++	++	++
18	0	++	++	++	+
19	-	++	++	++	++
20	0	++	++	++	++
21	0	+	++	++	++
22	0	++	++	++	++
23	0	0	0	0	0
24	0	+	++	++	+
25	0	+	++	++	++
27	-	-	-	-	-
28	+	-	-	-	-
29	+	+	+	++	+++
30	+++	++	++	+	0
31	++	+	+	+	0
32	++	++	++	+++	0
33	-	-	+	-	0
34	-	-	-	-	0
35	+	+++	++	+	0
36	-	+	++	++	0
37	+++	+++	-	++	0
38	++	+++	-	+++	0
39	+++	+++	++	-	0
40	+	+	++	++	0
41	+++	++	++	-	0
42	++	++	++	++	0
43	+++	++	++	+	0
44	+++	++	++	+	0
45	+++	++	++	+	0
46	+	-	-	-	0
47	+++	++	++	++	0
48	+++	+	++	+	0
49	+	+	++	+	0
50	+++	++	++	++	0
52	0	0	0	0	0
53	++	++	++	+++	+++
54	-	-	+	-	+++
55	+++	++	++	+++	++
59	+	+	++	+++	+++
60	+	+	++	++	+++
62	++	++	++	+++	+++
63	+++	+++	++	+++	+++
65	+	++	0	++	++
66	+++	+	++	+++	+++
67	+++	+	++	+++	+++
68	-	+	-	++	-
69	+++	+++	++	++	+++
70	+++	+++	++	+++	+++
71	+++	+++	++	+++	+++
72	+++	++	++	+++	+++

COMPOUND NUMBER	ERYSGT	PYRJOR	PUCCRT	LEPTNO	PLASVI
73	++	+	++	+++	+++
75	-	+	++	++	+++
76	-	++	++	+++	+++
78	-	-	++	-	+++
80	+++	+++	++	-	+++

### 組成物

式(1)又は(2)の化合物は組成物の形態で適用され、それは本発明の重要な実施態様であり、式(1)又は(2)の化合物及び植物学的に許容し得る不活性担体を含む。組成物は適用の場合に水中に分散される濃厚調剤、あるいはさらに処理されずに適用される粉末又は顆粒である。組成物は農業化学の分野において従来用いられている方法及び処方に従って調製されるが、そこに本発明の化合物が存在する故に新規であり、重要である。しかし確実に農業化学者がいずれの所望の組成物をも容易に調製することができるために、組成物の調製に関していくらか説明する。

化合物が適用される形態である分散液は最も多くの場合、化合物の濃厚調剤から調製される水性懸濁液又は乳液である。そのような水溶性、水一懸濁性又は乳化性調剤は、通常水和剤として既知の固体、あるいは通常濃厚乳剤又は水性懸濁液として既知の液体である。圧縮して水分散性顆粒を形成することができる水和剤は、活性化合物、不活性担体及び界面活性剤の均質混合物を含む。活性化合物の濃度は通常約10重量%～約90重量%である。不活性担体は通常アタパルジヤイトクレイ、モントモリロナイトクレイ、ケイ藻土又は精製酸性酸塩類から選ばれる。水和剤の約0.5%～約10%を構成する有効な界面活性剤は、スルホン化リグニン類、縮合ナフタレンスルホン酸塩類、ナフタレンスルホン

酸塩類、アルキルベンゼンスルホン酸塩類、アルキルサルフェート類、及び非イオン性界面活性剤、例えばアルキルフェノール類のエチレンオキシド付加物の中に見いだされる。

化合物の濃厚乳液は不活性担体に溶解された簡便な濃度、例えば1リットルの液体当たり約50～約500グラムの化合物を含み、この濃度は約10%～約5

0%に等しく、不活性担体は水混和性溶媒又は水-非混和性有機溶媒と乳化剤の混合物である。有用な有機溶媒には芳香族化合物、特にキシレン類、ならびに石油留分、特に石油の高沸点ナフタレン性及びオレフィン性部分、例えば重質芳香族ナフサが含まれる。他の有機溶媒、例えばロジン誘導体を含むテルペン性溶媒、シクロヘキサノンなどの脂肪族ケトン類、ならびに2-エトキシエタノールアルコールなどの複合 (complex alcohols) も用いることができる。濃厚乳液のために適した乳化剤は従来の非イオン性界面活性剤、例えば上記のものから選ばれる。

水性懸濁液は、約5重量%～約50重量%の範囲の濃度で水性ビヒクルに分散された、本発明の水-不溶性化合物の懸濁液を含む。懸濁液は、化合物を微粉砕し、それを水及び上記で議論されたものと同じ型から選ばれる界面活性剤を含むビヒクル中に激しく混合することにより調製される。無機塩類及び合成もしくは天然ゴムなどの不活性成分も、水性ビヒクルの密度及び粘度を向上させるために加えることができる。水性混合物を調製し、サンドミル、ボールミル又はビストン型ホモジナイザーなどの装置でそれを均質化することにより、化合物を同時に摩砕及び混合するのが多くの場合に最も有効である。

化合物は顆粒状組成物として適用することもでき、それは土壌への適

用に特に有用である。顆粒状組成物は通常約0.5重量%～約10重量%の化合物を不活性担体に分散させて含み、担体は完全に、又は大部分がクレーもしくは類似の安価な物質から成る。そのような組成物は通常、適した溶媒中に化合物を溶解し、それを約0.5～3mmの範囲の適した粒径に予備形成された顆粒状担体に適用することにより調製される。そのような組成物は担体及び化合物のドウ又はペーストを作り、粉砕及び乾燥して所望の顆粒径を得ることにより調製することもできる。

化合物を含む粉末は単に粉末状の化合物に適した粉末状農業的担体、例えばカオリンクレー、粉砕火山岩などと均質に混合することにより調製される。粉末は約1～約10%の化合物を含むのが適している。

いずれかの理由で望ましい場合、適した有機溶媒、通常は無刺激石油、例えば



農業化学において広く用いられているスプレー油中の溶液の形態で化合物を適用するのは、同様に実用的である。

殺虫剤及び殺ダニ剤は一般に液体担体中の活性成分の分散液の形態で適用される。適用比は担体中の活性成分の濃度により言うのが慣例的である。最も広く用いられる担体は水である。

式(1)及び(2)の化合物はエアゾール組成物の形態で適用することもできる。そのような組成物の場合、活性化合物は圧力発生プロペラント混合物である不活性担体に溶解又は分散される。エアゾール組成物は、そこから混合物が噴霧バルブを介して分配される容器に包装される。プロペラント混合物は、有機溶媒と混合されていることができる低沸点ハロカーボン類、あるいは不活性気体又は気体状炭化水素を用いて加圧された水性懸濁液を含む。

昆虫及びダニ類の場所に適用される化合物の実際の量は重要ではなく、

上記の実施例を見て当該技術分野における熟練者が容易に決定することができる。一般に10ppm～5000ppmの濃度の化合物が優れた抑制を与えることが予想される。多くの化合物の場合、100～1500ppmの濃度が十分である。大豆及び綿などの畑作物の場合、化合物に関する適した適用比は約0.5～1.5lb/Aであり、典型的に1200～3600ppmの化合物を含む噴霧組成物を50ガロン/Aで適用する。柑橘作物の場合、適した適用比は約100～1500ガロン/Aの、100～1000ppmの比率の噴霧調剤である。

化合物が適用される場所は、昆虫又はクモ形類が棲息するいずれの場所、例えば野菜作物、果実及びナッツの木、ぶどうの木、及び装飾用植物であることもできる。多くのダニの種が特定の宿主に特異的であるので、ダニの種の前記のリストは、本化合物を用いることができる広範囲の状況の代表的例を示している。

ダニの卵が毒性作用に対して抵抗する独特の能力の故に、他の既知のクモ形類の場合に真実である通り、新しく発生する幼虫の抑制のためには繰り返し適用が望ましい。

本発明の化合物の以下の調剤は、本発明の実行において有用な典型的組成物である。

A. 0.75濃厚乳液

式(1)又は(2)の化合物	9.38%
「TOXIMUL D」	2.50%
(非イオン性／アニオン性界面活性剤ブレンド)	
「TOXIMUL H」	2.50%
(非イオン性／アニオン性界面活性剤ブレンド)	
「EXXON 200」(ナフタレン性溶媒)	85.62%

B. 1.5濃厚乳液

式(1)又は(2)の化合物	18.50%
「TOXIMUL D」	2.50%
「TOXIMUL H」	2.50%
「EXXON 200」	76.50%

C. 1.0濃厚乳液

式(1)又は(2)の化合物	12.50%
N-メチルピロリドン	25.00%
「TOXIMUL D」	2.50%
「TOXIMUL H」	2.50%
「EXXON 200」	57.50%

D. 1.0水性懸濁液

式(1)又は(2)の化合物	12.00%
「PLURONIC P-103」	1.50%
(フロビレンオキシド及びエチレンオキシドの ブロックコポリマー、界面活性剤)	
「PROXEL GXL」(殺生物剤／防腐剤)	0.05%
「AF-100」(シリコンベース消泡剤)	0.20%
「REAX 88B」(リグノスルホン酸塩分散剤)	1.00%
プロピレングリコール	10.00%
ビーグム (veegum)	0.75%

キサンタン	0.25%
水	74.25%

E. 1.0水性懸濁液

式(1)又は(2)の化合物	12.50%
「MAKON 10」	1.00%
(10モルエチレンオキシド ノニルフェノール界面活性剤)	
「ZEOSYL 200」(シリカ)	1.00%
「AF-100」	0.20%
「AGRIWET FR」(界面活性剤)	3.00%
2%キサンタン水和物	10.00%
水	72.30%

F. 1.0水性懸濁液

式(1)又は(2)の化合物	12.50%
「MAKON 10」	1.50%
「ZEOSYL 200」(シリカ)	1.00%
「AF-100」	0.20%
「POLYFON H」	0.20%
(リグノスルホン酸塩分散剤)	
2%キサンタン水和物	10.00%
水	74.60%

G. 水和剤

式(1)又は(2)の化合物	25.80%
「POLYFON H」	3.50%
「SELLOGEN HR」	5.00%
「STEPANOL ME DRY」	1.00%
アラビアゴム	0.50%
「HISIL 233」	2.50%

バーデンクレー

61.70%

H. 顆粒

式(1)又は(2)の化合物

5.0%

アロピレングリコール

5.0%

Exxon 200

5.0%

Florex 30/60顆粒状クレー

85.0%

## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inventor:   
 PCT/US 94/14848

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
IPC 6 C07D239/42 C07D239/46 C07D401/12 A01N43/54

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Maximum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 6 C07D

Documentation searched other than maximum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP, A, O 379 806 (NITSUI PETROCHEMICAL IND.) 1 August 1990 see claims -----	1

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application filed, cited to undermine the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents in the art.
- "Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

28 March 1995

Date of mailing of the international search report

= 3. 04. 95

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.O. Box 1818, Fraunhofer 2  
NL - 2280 EV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2060, Telex 31 451 ego nl,  
Fax: (+31-70) 340-3096

Authorized officer

Francois, J

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Int. Appl. No.

PCT/US 94/14848

Parent document cited in search report	Publication date	Parent family member(s)	Publication date
EP-A-0379806	01-08-90	JP-A- 2221275	04-09-90
		AU-B- 629595	08-10-92
		AU-A- 4732989	05-07-90
		CA-A- 2006944	29-06-90
		EP-A- 0612746	31-08-94
		HU-B- 210001	30-01-95
		US-A- 5147876	15-09-92
		US-A- 5264435	23-11-93
		CN-A- 1045390	19-09-90
		CN-A- 1090846	17-08-94
		HU-B- 209594	29-08-94
		HU-B- 209574	29-08-94
		JP-A- 3014568	23-01-91

---

 フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>8</sup>	識別記号	序内整理番号	FI		
C 07 F	7/10	9636-4H	C 07 F	7/10	T
	9/6512	9450-4H		9/6512	

(81)指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AP(KE, MW, SD, SZ), AM, AT, AU, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, HU, JP, KE, KG, KR, KZ, LK, LR, LT, LU, LV, MD, MG, MN, MW, NL, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SI, SK, TJ, TT, UA, UZ